

УДК 539.1+539.2+538.955

РАССЕЯНИЕ ВПЕРЕД МЕССБАУЭРОВСКОГО ИЗЛУЧЕНИЯ НА ТОЛСТЫХ ПОГЛОТИТЕЛЯХ В УСЛОВИЯХ ЯМР НА ВОЗБУЖДЕННОМ СОСТОЯНИИ ЯДРА

Э.К. Садыков, В.В. Аринин, В.Ю. Любимов

Аннотация

В работе исследовано явление резонансного рассеяния мессбауэровского излучения в направлении вперед (РВ) на толстых поглотителях с магнитным порядком. Предполагается возбуждение образца резонансным радиочастотным (РЧ) полем (выполняются условия ЯМР на возбужденном состоянии ядра). Конкретные расчеты приведены для мессбауэровского изотопа ^{57}Fe . Показано, что резонансное РЧ-поле приводит к образованию сателлитов в спектре РВ, аналогично рассмотренному ранее случаю воздействия на образец ультразвуком или нерезонансным РЧ-полем. Обнаружено также явление РЧ-индуцированной частичной прозрачности среды, то есть увеличение интенсивности прошедшего через образец мессбауэровского излучения с ростом амплитуды РЧ-поля.

Ключевые слова: радиочастотная мессбауэровская спектроскопия, рассеяние вперед мессбауэровского излучения, двойной гамма-магнитный резонанс.

Введение

Еще в 90-е годы XX в. были проведены мессбауэровские исследования по схеме рассеяния вперед (РВ) на толстых образцах, подверженных воздействию внешнего периодического поля. В спектрах РВ, измеренных на образцах из нержавеющей стали в режиме воздействия ультразвука (УЗ), были обнаружены сателлиты [1–5], аналогичные ранее известным УЗ-сателлитам в спектрах поглощения [6]. В [5] была предложена теоретическая модель формирования спектров РВ с учетом воздействия на образец УЗ. Эта модель адекватно описывала структуру экспериментально наблюдаемых сателлитов и обнаруженное в этих условиях увеличение интенсивности прошедшего через образец излучения с ростом интенсивности звука. Другой способ периодического воздействия на образец – это наложение на него радиочастотного (РЧ) поля. Следует различать магнитострикционный и магнитодинамический механизмы воздействия РЧ-поля на магнитный образец. В первом случае РЧ-поле возбуждает в образце УЗ, и ожидаемые изменения мессбауэровских спектров во многом схожи с эффектами, обнаруженными в [1–6]. Магнитодинамический механизм, в свою очередь, можно разделить на два типа. Первый – РЧ-переключение поля на ядре – реализуется обычно в магнитомягких системах, что приводит также к формированию сателлитной структуры спектров поглощения и РВ [7–10]. Кроме того, переключение поля является причиной РЧ-коллапса магнитной сверхтонкой структуры спектров поглощения при достаточно больших частотах РЧ-поля. Магнитодинамический механизм второго типа может возникнуть в магнитных системах с выраженной анизотропией при условии равенства частоты внешнего РЧ-поля частоте резонансных спиновых переходов мессбауэровского ядра. Этот случай известен как режим ЯМР в мессбауэровской спектроскопии или режим двойного гамма-магнитного резонанса (ДГМР). Весьма интересные

теоретические результаты, полученные в рамках этой модели для спектров поглощения [11, 12], были подтверждены экспериментально [13, 14]. Предметом рассмотрения настоящего сообщения является теоретическая модель формирования мессбауэровского спектра РВ в условиях ЯМР на возбужденном ядерном уровне. Эту работу можно рассматривать как логическое продолжение нашей недавней работы по моделированию спектра РВ с учетом РЧ-переключения поля на ядре [10]. Как и в [10], объектом изучения являются также закономерности прохождения мессбауэровского излучения через толстую резонансную среду (^{57}Fe).

1. Теоретическая модель

Для анализа РЧ-эффектов при прохождении монохроматической гамма-волны $E_0(y, t) \exp(i(k_\gamma y - \omega t))$ через резонансную среду используем классическое уравнение

$$\partial E_0(y, t) / \partial y = -2\pi J_0(y, t) / c, \quad (1)$$

где $J_0(y, t)$ – медленно меняющаяся амплитуда плотности тока перехода $J(y, t)$ для системы мессбауэровских ядер. Такой подход уже применялся ранее для вычисления спектров РВ с учетом УЗ-колебаний [5] и РЧ-переключения [10]. Представим $J(y, t)$ как интеграл в \mathbf{k} -пространстве

$$J(y, t) = (2\pi)^{-3} \int d\mathbf{k} e^{i\mathbf{k}\mathbf{r}} \sum_a \langle a(t) | \hat{j}(\mathbf{k}) | a(t) \rangle e^{-i\mathbf{k}\mathbf{r}_a}. \quad (2)$$

Вклад a -го мессбауэровского ядра с волновой функцией $|a(t)\rangle$ имеет вид [5, 10]

$$\begin{aligned} \langle a(t) | \hat{j}(\mathbf{k}) | a(t) \rangle &= -i(\hbar)^{-1} \langle \tilde{m} | \hat{j}(\mathbf{k}) | \tilde{M} \rangle \times \\ &\times \int_{-\infty}^t dt' \langle \tilde{M} | \hat{U}^e(t, t') | M \rangle \langle M | \hat{V}_a(t') | \tilde{m} \rangle \langle \tilde{m} | \hat{U}^g(t', t) | \tilde{m} \rangle. \end{aligned} \quad (3)$$

Здесь используются состояния определенной проекции для ядерного спина $|M\rangle$ и $|m\rangle$ и введены операторы эволюции ядра в возбужденном (e) и основном (g) состояниях

$$\hat{U}^{e,g}(t, t') = \hat{T} \exp \left(-\frac{i}{\hbar} \int_{t'}^t d\tau \cdot \hat{H}_1^{e,g}(\tau) \right), \quad \hat{H}_1^{e,g}(t) = \hat{H}_0 + \hat{H}_{hf}^{e,g}(t), \quad (4)$$

где \hat{H}_0 и $\hat{H}_{hf}^{e,g}(t)$ – гамильтонианы свободного ядра и сверхтонкого взаимодействия. Оператором $\hat{V}_a(t) = i\omega^{-1} \hat{j}^*(\mathbf{k}_\gamma) E_0(y_a, t) \exp(i(\mathbf{k}_\gamma \mathbf{r}_a - \omega t))$ в (3) производится учет взаимодействия ядра с гамма-фотоном с волновым вектором \mathbf{k}_γ . Эффект РЧ-поля с частотой Ω сводится к изменениям в (3) и (4); они связаны с тем, что сверхтонкое взаимодействие приобретает периодическую зависимость от времени $\hat{H}_{hf}^{e,g}(t) = \hat{H}_{hf}^{e,g}(t + T)$, $T = 2\pi/\Omega$. В режиме ЯМР на возбужденном уровне ядра (^{57}Fe) гамильтониан $\hat{H}_{hf}^e(t)$ описывает зеемановское взаимодействие ядерного спина с постоянным и вращающимся перпендикулярным эффективными полями, а $\hat{H}_{hf}^g(t)$ с большой точностью сводится к стационарному зеемановскому взаимодействию. Операторы эволюции $\hat{U}^{e,g}(t, t')$ в этом случае определены в [11, 12].

Стационарная РЧ-динамика ядерного спина в поглотителе приводит к периодической зависимости амплитуды проходящей фурье-компоненты излучения мессбауэровского источника от времени, то есть $E_0(y, t') = \sum_n c^n(y) \exp(-i\Omega n t')$, с граничным условием $c^n(0) \sim \delta_{n0}/(\omega_s - \omega + i\Gamma/2)$ для лоренцевой формы излучения

источника. Это позволяет нам разложить обе части уравнения (1) в ряд Фурье по Ω и приравнять коэффициенты при одинаковых гармониках. Вводя индекс поляризации гамма-волны σ , получим на основе (1) систему уравнений

$$\frac{\partial c_{\sigma}^n}{\partial y} = \sum_{n'} G_{\sigma\sigma'}^{nn'} c_{\sigma'}^{n'}(y), \quad (5)$$

$$G_{\sigma\sigma'}^{nn'} = \sum_{m_1, M'', \tilde{M}} \frac{A \Delta(\beta) \sigma B \sigma' \Delta(\vartheta) C \exp(i\varphi(n - n'))}{i(\omega_a - \omega + a_e \tilde{M} - n' \Omega - E_{m_1} + E_{M''} - i\Gamma/2)(2I_g + 1)}, \quad (6)$$

где $\Delta(\beta) = d_{M''-n+n'-m_1, \sigma}^{1\dagger}(\beta) d_{M''-m_1, \sigma'}^1(\beta)$, $\Delta(\vartheta) = d_{M''-n+n', \tilde{M}}^{3/2}(\theta) d_{\tilde{M}, M''}^{3/2\dagger}(\theta)$, $B = C(m_1, M'' - n + n' - m_1, M'' - n + n') C(m_1, M'' - m_1, M'')$ – комбинации элементов матриц вращений и коэффициентов Клебша–Гордона; коэффициент $A = -\sigma_0 N_0 f_{L-M} \Gamma/4$; σ_0 – максимальное сечение поглощения, N_0 – концентрация мессбауэровского изотопа, f_{L-M} – фактор Лэмба–Мессбауэра. Параметр ω_a задает положение линии поглотителя, значение a_e в режиме ЯМР есть $a_e = \sqrt{(\omega_0^e - \Omega)^2 + \Omega_R^2} = \Omega_R$, Ω_R – частота Раби РЧ-поля, $\beta = \pi/2$; угол θ задает направление распространения гамма-излучения относительно направления постоянного поля на ядре. Система уравнений (5) описывает процесс генерации сателлитов мессбауэровского излучения по мере его прохождения через поглотитель в режиме ЯМР.

Вычисление спектров РВ на основе системы уравнений (5) включает в первую очередь вычисление матрицы $G_{\sigma\sigma'}^{nn'}$, далее численное решение этой системы, порядок которой подбирается таким, чтобы обеспечить сходимость решения. Алгоритм вычисления спектра РВ (эмиссионного спектра за поглотителем толщины y) по аналогии с [10] может быть представлен соотношением

$$I(\omega', y, \omega_s, \omega_a) \sim \Gamma/2\pi \sum_n [(\omega_s - \omega' + n\Omega)^2 + (\Gamma/2)^2]^{-1} \times \\ \times \left| \{ \exp(\mathbf{G}(\omega_a, \omega' - n\Omega, \varphi) y) \}_{n0} \right|_{\varphi}^2 \quad (7)$$

Этот спектр подвергается свертке с функцией формы линии анализатора $\varphi_A(\omega', \tilde{\omega}_A)$, прежде чем сопоставить ему экспериментальный спектр РВ

$$I_{\text{exp}}(\tilde{\omega}_A, y, \omega_s, \omega_a) \sim \int d\omega' I(\omega', y, \omega_s, \omega_a) \varphi_A(\omega', \tilde{\omega}_A) \quad (8)$$

Интегрированием (8) (или (7)) по $\tilde{\omega}_A$ (или по ω') и представлением результата как функцию ω_s , может быть получен спектр поглощения. Например,

$$W_{\text{abs}}(\omega_s, \omega_a, y) \sim \int d\tilde{\omega}_A I_{\text{exp}}(\tilde{\omega}_A, y, \omega_s, \omega_a) = \int d\omega' I(\omega', y, \omega_s, \omega_a). \quad (9)$$

2. Результат и их обсуждение

Влияние ЯМР-переходов между спиновыми уровнями ядра на форму мессбауэровских спектров поглощения и РВ носит специфический характер. В этом случае (вращающееся РЧ-поле) формируется система квазиэнергетических (одетых) спиновых состояний и в спектре поглощения нет разделения на основной спектр и сателлиты, как в УЗ-спектрах поглощения. В спектрах РВ следует ожидать основную линию и сателлиты, но число сателлитов будет конечно (в случае ^{57}Fe оно

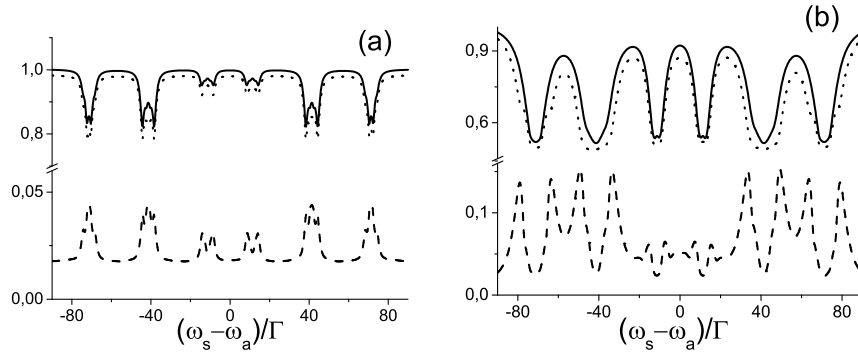


Рис. 1. Спектры поглощения и интенсивности спутников. Перпендикулярная геометрия ($\theta = \pi/2$), $\Omega_R = 2$, $\omega_0^e = 30$, (a) $T_e = 1$, (б) $T_e = 50$. Сплошная линия – полная интенсивность прошедшего излучения (спектр поглощения), пунктирная – суммарная интенсивность всех спутников, точечная – интенсивность линии источника. Здесь и далее все параметры указаны в единицах естественной ширины гамма-перехода Γ

равно 3). Это обусловлено тем, что в режиме ЯМР состояния ядерного спина (состояния Флоке) образуют конечное множество. Кроме того, расположение спутников относительно основной линии будет зависеть от настройки частоты источника на конкретный зеемановский уровень возбужденного состояния ядра. Напомним также, что каждый зеемановский переход имеет собственную поляризацию. Если излучение от источника имеет поляризацию, отличную от собственной поляризации данного перехода, то излучение с дополнительной поляризацией не поглощается, то есть такой поглотитель выступает как поляризатор. Вычисления по формулам (7) и (8) обнаруживают ожидаемые особенности спектров РВ в условиях ЯМР. Отметим, что все наши численные расчеты спектров поглощения и РВ выполнены без учета электронного поглощения.

Влияние РЧ-поля на спектры РВ и поглощения существенным образом зависит от эффективной толщины поглотителя $T_e = \sigma_0 N_0 f_{LM} u$. При малых толщинах поглотителя ($T_e \leq 1$) расчеты спектра поглощения по формуле (9) приводят к известному результату [11, 12] (см. рис. 1, а). В этом случае спектр РВ, вычисленный по формуле (7), состоит из одной (основной) линии, то есть спутанная структура эмиссионного спектра практически не заметна. При увеличении эффективной толщины поглотителя роль спутников возрастает, на рис. 1, б показана зависимость интегральной интенсивности, приходящейся на долю спутников, от частоты линии источника при $T_e \approx 50$; здесь же представлен спектр поглощения, который подвержен уширению благодаря эффекту толщины. Из рисунка видно, что наиболее эффективная генерация спутников имеет место не при точной настройке линии источника на зеемановские переходы, а при некотором отклонении от резонанса. На рис. 2 представлены спектры РВ для наиболее оптимальных режимов. Еще в [5] был обнаружен эффект возрастания интенсивности радиационного канала в спектре РВ, при прохождении излучения через среду, модулированную УЗ. Схожий эффект был изучен позже, в работе [10], на основе анализа спектров рассеяния, измеренных в условиях РЧ-возмущения магнитного образца. Закономерности, обнаруженные в упомянутых работах, подтверждаются и нашими расчетами. На рис. 3, а представлена зависимость полной интенсивности прошедшего излучения от толщины при различных значениях амплитуды РЧ-поля. Система уравнений (5)–(9) позволяет нам также описать процессы преобразования поляризации излучения по мере его прохождения через резонансную среду. На рис. 3, б,

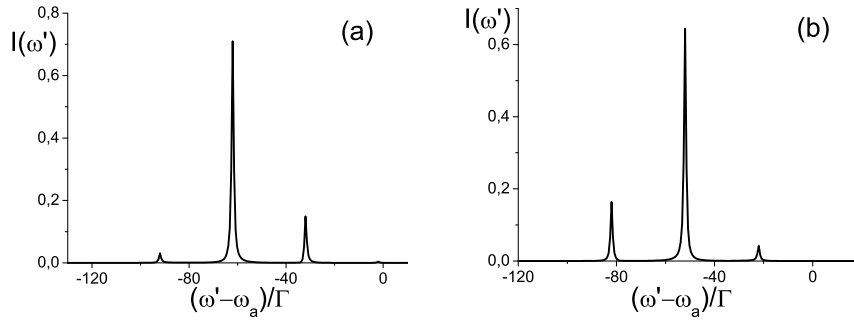


Рис. 2. Типичный спектр РВ: $\theta = \pi/2$, $T_e = 100$, $\Omega_R = 2$, $\omega_0^e = 30$, (a) $\omega_s = -62$, (б) $\omega_s = -52$

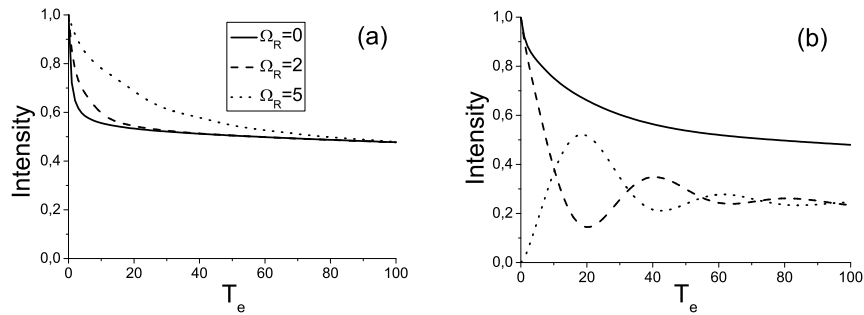


Рис. 3. (a) Зависимость полной интенсивности прошедшего через образец излучения от его эффективной толщины. Источник настроен на первую линию ($\omega_s = -71.36$), $\theta = \pi/2$, $\omega_0^e = 30$; (б) поляризованный источник ($\sigma = +1$) настроен на первую линию, ($\omega_s = -71.36$), $\theta = \pi/2$, $\omega_0^e = 30$, $\Omega_R = 2$. Сплошная линия – полная интенсивность прошедшего излучения, пунктирная – интенсивность прошедшего излучения с поляризацией $\sigma = +1$, точечная – с поляризацией $\sigma = -1$

например, отражено изменение поляризационного состояния изначально поляризованного излучения в зависимости от толщины. На рис. 4 представлены результаты расчета интенсивности прошедшего излучения на основной частоте и интегральной интенсивности сателлитов в зависимости от толщины поглотителя при различных значениях амплитуды РЧ-поля. Следствием конечности множества квазиэнергетических состояний являются осцилляции суммарной интенсивности сателлитов с изменением толщины поглотителя (см. рис. 4).

Заключение

Нами проведен теоретический анализ спектра РВ, формируемого при прохождении мессбауэровского излучения через толстый поглотитель в режиме ЯМР-перемешивания его ядерных спиновых состояний. Показано, что в этом случае спектр РВ содержит, помимо основной линии, сателлиты на частоте РЧ-поля, как это ранее наблюдалось в условиях создания в поглотителе УЗ-поля [1–5] или режима переключающегося поля на ядре [10]. В работе используется теоретическая модель формирования спектров РВ [10], модифицированная с учетом особенности рассматриваемого здесь механизма РЧ-воздействия (ЯМР) на поглотитель. Эта модель позволяет также проводить более адекватную интерпретацию

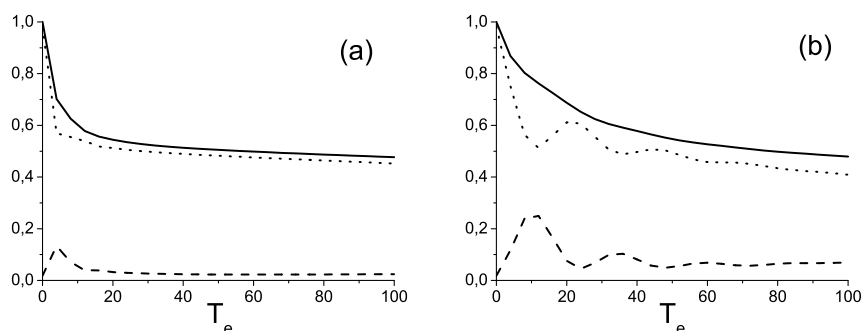


Рис. 4. Настройка на 1-ю линию ($\omega_s = -71,36$), $\theta = \pi/2$, $\omega_0^e = 30$. (а) $\Omega_R = 2$, (б) $\Omega_R = 5$. Сплошная линия – полная интенсивность прошедшего излучения (спектр поглощения), пунктирная – суммарная интенсивность всех спутников, точечная – интенсивность линии источника

эффектов частичного просветления среды по отношению к мессбауэровскому излучению, рассмотренных в последние годы [15, 16].

Работа частично поддержана РФФИ (проект № 11-02-00896-а).

Summary

E.K. Sadykov, V.V. Arinin, V.Yu. Lyubimov. Forward Scattering of Mössbauer Radiation by Thick Absorbers under NMR Conditions in an Exited Nuclear State.

This work deals with the resonant scattering of Mössbauer radiation in forward direction by a thick absorber with magnetic order. We propose an excitation of the absorber by a resonant radiofrequency field (provided NMR condition in the exited nuclear state is fulfilled). We made concrete calculations for the Mössbauer isotope ^{57}Fe and found that the resonant radiofrequency field causes the formation of satellites in the forward scattering spectra, analogously to the case of satellites excited by an ultrasound or a nonresonant radiofrequency field. We also detected the phenomenon of radiofrequency-induced partial transparency of the medium, i.e., the increase in the intensity of the Mössbauer radiation transmitted through the absorber, accompanied by the increase in the radiofrequency field amplitude.

Keywords: radiofrequency Mössbauer spectroscopy, forward scattering of Mössbauer radiation, double gamma-magnetic resonance.

Литература

1. *Asher J., Cranshaw T.E., O'Connor D.A.* The observation of sidebands produced when monochromatic radiation passes through a vibrated resonant medium // J. Phys. A: Math. Nucl. Gen. – 1974. – V. 7, No 3. – P. 410–419.
2. *Tsankov L.T.* The spectrum of Mossbauer radiation passed through a vibrating resonant medium // J. Phys. A: Math. Gen. – 1980. – V. 13, No 9. – P. 2959–2967.
3. *Tsankov L.T.* Resonant and non-resonant amplitude modulation of Mossbauer gamma-quanta // J. Phys. A: Math. Gen. – 1980. – V. 13, No 9. – P. 2969–2974.
4. *Tsankov L.T.* Experimental observations on the resonant amplitude modulation of Mossbauer gamma rays // J. Phys. A: Math. Gen. – 1981. – V. 14, No 1. – P. 275–281.
5. *Shvydko Yu.V., Smirnov G.V.* Enhanced yield into the radiative channel in Raman nuclear resonant forward scattering // J. Phys.: Condens. Matter. – 1992. – V. 4, No 10. – P. 2663–2685.

6. *Ruby S.L., Bolef D.I.* Acoustical modulation of the gamma rays from ^{57}Fe // *Phys. Rev. Lett.* – 1960. – V. 5, No 1. – P. 5–7.
7. *Балдохин Ю.В., Борщ С.А., Клингер Л.М., Повитцкий В.А.* Влияние радиочастотного перемангничивания на гамма-резонансные спектры ферромагнетиков // *Журн. эксперим. и теорет. физики.* – 1973. – Т. 63, Вып. 2. – С. 708–712.
8. *Korsecwicz M., Kotlicki A.* Mossbauer study of the separation of the rf sideband and collapse effects in invar // *J. Phys. Chem. Solids.* – 1980. – V. 41, No 6. – P. 631–633.
9. *Dzyublik A.Ya., Spivak V.Yu.* Mossbauer absorption by thick ferromagnets in radio-frequency magnetic field // *Ukr. J. Phys.* – 2002. – V. 42. – P. 390–395.
10. *Садыков Э.К., Дзюблик А.Я., Петров Г.И., Аринин В.В., Спивак В.Ю.* Мессбауэровское рассеяние вперед на FeVO_3 в режиме радиочастотного перемангничивания // *Письма в ЖЭТФ.* – 2010. – Т. 92, Вып. 4. – С. 279–283.
11. *Hack M.N., Hamermesh M.* Effect of radiofrequency resonance on the natural line form // *Il Nuovo Cimento.* – 1961. – V. 19, No 3. – P. 546–557. Т. 92, Вып. 4. – С. 279–283.
12. *Gabriel H.* Effect of radio-frequency fields on Mossbauer spectra // *Phys. Rev.* – 1969. – V. 184, No 2. – P. 359–363.
13. *Vagizov F.G.* The splitting of hyperfine lines of ^{57}Fe nuclei in RF magnetic field // *Нур. Int.* – 1990. – V. 61, No 1–4. – P. 1359–1362.
14. *Tittonen I., Lippmaa M., Ikonen E., Linden J., Katila T.* Observation of Moessbauer resonance line splitting caused by Rabi oscillations // *Phys. Rev. Lett.* – 1992. – V. 69, No 19. – P. 2815–2818.
15. *Vagizov F.G., Manapov R.A., Sadykov E.K., Lyubimov V.V., Kocharovskaya O.A.* The effect of radio-frequency magnetic field on resonant absorption saturation in FeVO_3 // *Нур. Int.* – 2009. – V. 188, No 1–3. – P. 143–150.
16. *Любимов В.Ю., Петрушенко Ю.Я., Попов Е.А., Самарцев В.В.* Эффекты квантовой интерференции гамма-излучения в оптически протяженной среде // *Учен. зап. Казан. ун-та. Сер. Физ.-матем. науки.* – 2009. – Т. 151, кн. 1. – С. 121–129.

Поступила в редакцию
09.04.11

Садыков Эдгар Камилович – доктор физико-математических наук, профессор кафедры физики твердого тела, Казанский (Приволжский) федеральный университет, г. Казань, Россия.

E-mail: esad@ksu.ru

Аринин Виталий Валерьевич – кандидат физико-математических наук, инженер кафедры физики твердого тела, Казанский (Приволжский) федеральный университет, г. Казань, Россия.

E-mail: varininse@mail.ru

Любимов Виктор Юрьевич – инженер Института физики, Казанский (Приволжский) федеральный университет, г. Казань, Россия.

E-mail: victor.lyubimov@gmail.com